

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-016594

(43)Date of publication of application : 22.01.1999

(51)Int.Cl.

H01M 8/04

H01M 8/12

H01M 10/54

(21)Application number : 09-166224

(71)Applicant : KANSAI ELECTRIC POWER CO INC:THE  
FUJIKURA LTD

(22)Date of filing : 23.06.1997

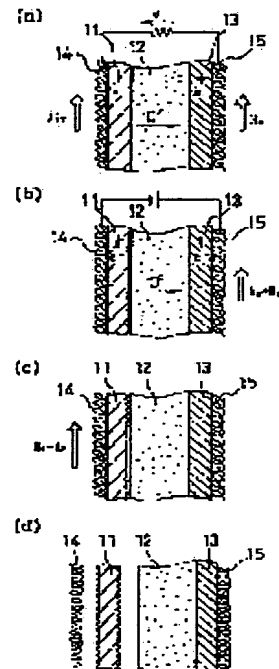
(72)Inventor : FUJITA JUNICHI  
TAKEUCHI SHINJI  
NAGATA MASAKATSU  
MOCHIZUKI MASATAKA  
ONO MIKYUKI  
IWAZAWA TSUTOMU  
KANEDA NAMIKO

## (54) DISASSEMBLING METHOD FOR SOLID ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a disassembling method for a solid electrolyte type fuel cell capable of separating and recovering each constituent member.

**SOLUTION:** In such condition that an air electrode 11 and a fuel electrode 13 are electrically connected at a high temperature, an oxidizing gas supply to the air electrode 11 is stopped and a surface of the fuel electrode 13 is exposed to a reducing gas atmosphere. By applying voltage forcibly to the electrodes, reducing reaction of the air electrode 11 in an interface between the electrode 11 and a solid electrolyte 12 is promoted to separate the solid electrolyte 12 from the air electrode 11. In addition, reducing reaction in the surface of the air electrode 11 is promoted by exposing the air electrode 11 to a reducing atmosphere of high temperature to separate a collecting material 14 fixed to the surface of the air electrode 11.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 13.02.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the  
examiner's decision of rejection or application  
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3758819

[Date of registration] 13.01.2006

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of extinction of right]

**BEST AVAILABLE COPY**

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte, and the current collection ingredient which fixed on said air pole The dismantling approach of the solid oxide fuel cell characterized by having the process which separates said current collection ingredient from said air pole by exposing the front face of this air pole to a reducing gas ambient atmosphere under the condition which makes temperature of said air pole 500 degrees C – 1200 degrees C.

[Claim 2] The dismantling approach of a solid oxide fuel cell according to claim 1 that said reducing gas is characterized by being the mixed gas of hydrogen gas and inert gas.

[Claim 3] The dismantling approach of the solid oxide fuel cell according to claim 2 characterized by the mole fraction of said hydrogen gas to said mixed gas being 1% – 4%.

[Claim 4] In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, and the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte While making temperature of said solid electrolyte, a fuel electrode, and an air pole into 700 degrees C – 1200 degrees C and supplying reducing gas to this fuel electrode front face The dismantling approach of the solid oxide fuel cell characterized by having the process which separates said solid electrolyte and said air pole by connecting said air pole and said fuel electrode electrically under the conditions which suspended supply of oxidation gas on this air pole front face.

[Claim 5] The dismantling approach of the solid oxide fuel cell according to claim 4 characterized by impressing an electrical potential difference between two electrodes in the process which separates said solid electrolyte and said air pole so that said air pole may serve as minus potential and said fuel electrode may serve as plus potential.

[Claim 6] The dismantling approach of a solid oxide fuel cell according to claim 4 or 5 that said reducing gas is characterized by being the mixed gas of hydrogen gas and inert gas.

[Claim 7] The dismantling approach of the solid oxide fuel cell according to claim 6 characterized by the mole fraction of the hydrogen gas to said mixed gas being 1% – 4%.

[Claim 8] In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte, and the current collection ingredient which fixed on said air pole While making temperature of said solid electrolyte, a fuel electrode, and an air pole into 700 degrees C – 1200 degrees C and supplying reducing gas to this fuel electrode front face Under the conditions which suspended supply of oxidation gas on this air pole front face, by connecting said air pole and said fuel electrode electrically By making temperature of said air pole into 500 degrees C – 1200 degrees C after the 1st process which separates said solid electrolyte and said air pole, and said 1st process, and exposing the front face of this air pole to a reducing gas ambient atmosphere The dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has the 2nd process which separates said current collection ingredient from said air pole.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] Especially this invention relates to the dismantling approach which can separation collect the ingredients which constitute a cell about the dismantling approach of the quality type fuel cell of solid-state electric field.

[0002]

[Description of the Prior Art] A solid oxide fuel cell (SOFC) makes basic structure 3 layer structures which consist of an air pole, a solid electrolyte, and a fuel electrode.

[0003] Drawing 2 is the sectional view showing the example of structure of the conventional single cell cylindrical [ SOFC ]. The sectional view which drawing shown in the drawing 2 Nakagami side cut in parallel with the cylindrical direction of a major axis, and drawing shown in the drawing 2 Nakashita side are sectional views cut at right angles to the cylindrical direction of a major axis. Here, three layers consist of outsides in order of the cylinder-like air pole 21, the solid electrolyte 22, and the fuel electrode 23.

[0004] Moreover, as shown in this drawing, on the outside surface of an air pole 21, and the internal surface of a fuel electrode 23, it has the current collection ingredients 24 and 25 in many cases, respectively. Inside the current collection ingredient 25, it has the electric conduction [ a fuel feeding pipe-cum- ] tubing 26 which has many gas blowdown holes.

[0005] The gas which fuel gas, such as hydrogen (H<sub>2</sub>), was supplied in the electric conduction [ a fuel feeding pipe-cum- ] tubing 26, and blew off from the gas blowdown hole is supplied to the front face of a fuel electrode 23 through the opening of the current collection ingredient 25. Moreover, this electric conduction [ a fuel feeding pipe-cum- ] tubing 26 also has a role of a drawer electrode of a fuel electrode 23, and is electrically connected to a fuel electrode 23 through the current collection ingredient 25.

[0006] Oxidation gas, such as air (Air), is supplied to the cylinder exterior, and air pole 21 front face is supplied through the opening of the current collection ingredient 24.

[0007] If air (Air) is supplied to an air pole 21, oxygen ion (O<sup>2-</sup>) will be generated here. This O<sup>2-</sup> moves in the inside of a solid electrolyte 22, and reaches a fuel electrode 23. In a fuel electrode 23, H<sub>2</sub> supplied to this O<sup>2-</sup> and fuel electrode 23 reacts, and an electron (e<sup>-</sup>) is generated.

[0008] Drawing 3 is the decomposition perspective view showing the example of structure of the conventional nononotous mold SOFC. A single cell consists of a tabular air pole 31, a solid electrolyte 32 formed on one field of an air pole 31, and a fuel electrode 33 further formed on the field. As shown in this drawing, the upper and lower sides of a single cell are equipped with the separators 40 and 41 which are also interconnectors. Between an air pole 31 and a separator 40 or between a fuel electrode 33 and a separator 41, it has the mesh-like current collection ingredients 34 and 35 in many cases.

[0009] Since a high temperature service is needed in order for a solid electrolyte to show good oxygen ion conductivity, these SOFC(s) are usually operated at a 800 degrees C - 1100 degrees C elevated temperature. Therefore, as the solid electrolyte which constitutes SOFC, an air pole, and a fuel electrode, the high ingredient of chemical stability is used by each by the high-temperature-oxidation ambient atmosphere or elevated-temperature reducing atmosphere.

[0010] For example, as a solid electrolyte, it is chemically stable at high-temperature-oxidation reducing atmosphere, and, most generally the fully stabilized zirconia (YSZ) which shows good ion conductivity is used. While having high electronic conductivity as an air pole and a stable lanthanum strontium composites (La(1-y)Sr<sub>y</sub>MnO<sub>x</sub>) etc. has electronic conductivity high as a fuel electrode chemically in a high-temperature-oxidation ambient atmosphere, stable nickel (nickel), the cermet of YSZ, etc. are chemically used by elevated-temperature reducing atmosphere, respectively.

[0011] Moreover, the nickel (nickel) felt which it is stable in a high-temperature-oxidation ambient atmosphere, is stable as an air pole side current collection ingredient at elevated-temperature reducing atmosphere as a platinum (Pt) metallurgy (Au) fuel electrode side current collection ingredient which has high conductivity, and has high conductivity is used in many cases. As a separator, in a hot oxidation reduction ambient atmosphere,

while it is chemically stable, the lanthanum chromite system oxide ( $\text{LaCrO}_x$ ) in which high electronic conductivity is shown is used in many cases.

[0012]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Noble metals used as the ingredients and current collection ingredients which are used as an air pole, such as a lanthanum strontium manganite ( $\text{La}_{1-y}\text{Sr}_y\text{MnO}_x$ ), such as platinum (Pt) metallurgy (Au), are expensive ingredients. For this reason, a SOFC power generating plant serves as used, in case it dissolves, separation recovery is carried out, and to reuse is desired.

[0013] However, the ceramics is used for each of solid electrolytes which constitute SOFC, air poles, and fuel electrodes as a charge of a principal member, and in order to maintain an electrical property and reinforcement, they has fixed firmly [ both ] through processes, such as sintering. Moreover, while elevated-temperature operation also of the current collection ingredient arranged on an air pole and its front face is carried out, it will fix firmly mutually. For this reason, it is very difficult to carry out separation recovery of each of these ingredients from used SOFC.

[0014] Moreover, since the manganic acid ghost which is the principal component of an air pole is an ingredient specified as industrial waste, it has possibility [ that a lot of industrial waste may come out ] fear with a generation-of-electrical-energy plant operation halt.

[0015] The purpose of this invention is offering easily the dismantling approach of the solid oxide fuel cell in which separation recovery is possible for a configuration member.

[0016]

[Means for Solving the Problem] The description of the dismantling approach indicated to claim 1 of this invention In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte, and the current collection ingredient which fixed on said air pole It is having the process which separates said current collection ingredient from said air pole by exposing the front face of this air pole to a reducing gas ambient atmosphere under the condition which makes temperature of said air pole 500 degrees C – 1200 degrees C.

[0017] According to the approach of above-mentioned claim 1, the surface layer of an air pole is returned and it becomes weak. For this reason, the air pole front face which the current collection ingredient has fixed turns that it is powdered, and it becomes possible to separate a current collection ingredient from an air pole easily.

[0018] The description of the dismantling approach indicated to claim 2 of this invention is making said reducing gas into the mixed gas of hydrogen gas and inert gas in the approach of claim 1.

[0019] According to the approach of above-mentioned claim 2, the reduction reaction of an air pole which occurs when the approach of claim 1 is used can be caused certainly.

[0020] The description of the dismantling approach indicated to claim 3 of this invention is making the mole fraction of the hydrogen gas to said mixed gas into 1% – 4% in the approach of claim 2.

[0021] According to the approach of above-mentioned claim 3, since the mole fraction of hydrogen gas is in the explosion limit, the insurance of an activity is securable.

[0022] The description of the dismantling approach indicated to claim 4 of this invention In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, and the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte While making temperature of said solid electrolyte, a fuel electrode, and an air pole into 700 degrees C – 1200 degrees C and supplying reducing gas to this fuel electrode front face It is the conditions which suspended supply of oxidation gas on this air pole front face, and is having the process which separates said solid electrolyte and said air pole by connecting said air pole and said fuel electrode electrically.

[0023] According to the approach of above-mentioned claim 4, if the potential difference between an air pole and a fuel electrode exists, according to that potential difference, oxygen ion will be desorbed from an air pole and this oxygen ion will move to a fuel electrode through a solid electrolyte. In connection with the elimination reaction of this oxygen ion, an air pole is returned and it changes to the powder-like matter. In order that the air pole of a junction interface with a solid electrolyte may carry out disintegration, it becomes possible to carry out separation recovery of an air pole and the solid electrolyte.

[0024] The description of the dismantling approach indicated to claim 5 of this invention is impressing an electrical potential difference between two electrodes so that said air pole's may serve as minus potential and said fuel electrode's may serve as plus potential in the process which separates said solid electrolyte and said air pole of an approach of claim 4.

[0025] According to the approach of above-mentioned claim 5, since the potential difference occurs certainly between said air poles and said fuel electrodes, the reduction reaction of an air pole can be advanced efficiently more certainly.

[0026] The description of the dismantling approach indicated to claim 6 of this invention is making reducing gas into the mixed gas of hydrogen gas and inert gas in claim 4 or claim 5.

[0027] According to the approach of above-mentioned claim 6, the reduction reaction of an air pole which

occurs when the approach of claim 4 or claim 5 is used can be caused certainly.

[0028] The description of the dismantling approach indicated to claim 7 of this invention is making the mole fraction of the hydrogen gas to said mixed gas into 1% – 4% in the approach of claim 6.

[0029] According to the approach of above-mentioned claim 7, since the mole fraction of hydrogen gas is in the explosion limit, the insurance of an activity is securable.

[0030] The description of the dismantling approach indicated to claim 8 of this invention In the dismantling approach of the solid oxide fuel cell which has a solid electrolyte, the fuel electrode formed in one field of said solid electrolyte, the air pole formed in the field of another side of said solid electrolyte, and the current collection ingredient which fixed on said air pole While making temperature of said solid electrolyte, a fuel electrode, and an air pole into 700 degrees C – 1200 degrees C and supplying reducing gas to this fuel electrode front face On the conditions which suspended supply of oxidation gas on this air pole front face, by connecting said air pole and said fuel electrode electrically It is having the 2nd process which separates said current collection ingredient from said air pole by making temperature of said air pole into 500 degrees C – 1200 degrees C after the 1st process which separates said solid electrolyte and said air pole, and said 1st process, and exposing the front face of this air pole to a reducing gas ambient atmosphere.

[0031] Since according to the approach of above-mentioned claim 8 a current collection ingredient is separable from an air pole with the 2nd process while a solid electrolyte and an air pole are separable with the 1st process, it becomes possible from a solid oxide fuel cell to carry out separation recovery of the air pole independently.

[0032]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of operation of this invention is explained. SOFC made into the object of dismantling — cylindrical [ conventional ] and a monotonous mold — which SOFC is sufficient.

[0033] For  $\text{La}(1-y)\text{Sr}_y\text{MnOx}$  and a fuel electrode, a nickel-YSZ cermet and an air pole side current collection ingredient are [ a solid electrolyte / YSZ and an air pole / Pt, Au, and the fuel electrode side current collection ingredient of each typical component of these SOFC(s) ] nickel felt.

[0034] (Gestalt of the 1st operation) The gestalt of implementation of the 1st of the dismantling approach of SOFC of this invention is explained. This dismantling approach is an approach the current collection ingredient which has fixed on the air pole front face is separable from an air pole.

[0035] After this approach suspends supply of the gas to a stop, an air pole, and a fuel electrode for operation of SOFC, it is in the condition which maintained the air pole to the elevated temperature, and consists only of a process which supplies reducing gas, such as hydrogen gas, to an air pole front face.

[0036] In this process, the reduction reaction shown in the following (1) types advances on an air pole front face.

[0037]

Air pole side :  $\text{La}(1-y)\text{Sr}_y\text{MnOx} + \text{H}_2 \rightarrow \text{X}_1 + \text{H}_2\text{O} \dots (1)$

Although the presentation of the product X1 generated by the reduction reaction of the above-mentioned (1) formula is not in \*\*, becoming a large number matter, such as MnO,  $\text{La}_x\text{O}_y$ , and  $\text{Sr}_x\text{O}_y$ , is expected, for example. According to an artificer's etc. experience, a product X1 is a weak thing in a low voice, and it is checked that disintegration is easy to be carried out. Namely, as a result of the reaction of the above-mentioned (1) formula, the air pole front face which the current collection ingredient has fixed carries out disintegration, and a current collection ingredient can dissociate now from an air pole easily.

[0038] In order to be dependent on the temperature by the side of an air pole and to obtain a realistic reaction rate, as for the reaction rate of the above-mentioned (1) formula, it is desirable to make 500 degrees C or more into 800 degrees C or more preferably, for example. Moreover, when it is set as the elevated temperature exceeding the operating temperature of SOFC, there is a possibility that the problem of the thermal load to the reaction and circumference facility between cell components may arise. Therefore, it is desirable to make about 1200 degrees C into upper limit temperature.

[0039] The reducing gas supplied to an air pole front face is good to use the mixed gas of for example, hydrogen (H2) gas and inert gas, such as nitrogen (N2) gas. In addition, the safety of an activity is securable if the mole fraction of the hydrogen gas to mixed gas is set up to about 1 – 4%. In addition, fuel gas other than hydrogen gas may be used.

[0040] In cylindrical [ which equipped the cylinder exterior with the air pole as shown in drawing 2 / SOFC ], it becomes possible by using an above-mentioned approach to carry out separation recovery of the air pole side current collection ingredient 24 easily. In order for noble-metals ingredients, such as recoverable Pt, not to have presentation change and to maintain the original value, the merit by separation recovery is large.

[0041] In addition, in the monotonous mold SOFC, there are also many things of the structure which the direct air pole and the separator have fixed without the current collection ingredient. Generally as a separator ingredient, ingredients, such as a more stable lanthanum chromite system oxide ( $\text{LaCrO}_x$ ), are used by reducing atmosphere from the air pole ingredient. For this reason, if reducing gas is passed between a separator and an air pole, an air pole will be returned more early. Consequently, the air pole of the interface part of a separator and an air pole changes to the weak product X1, and becomes possible [ separating a separator from an air pole

easily ].

[0042] (Gestalt of the 2nd operation) The gestalt of implementation of the 2nd of the dismantling approach of SOFC of this invention is explained. Especially this dismantling approach is an approach a solid electrolyte and an air pole are separable.

[0043] By this approach, after suspending supply of a stop and the oxidation gas to an air pole for operation of SOFC, where the temperature of an air pole, a solid electrolyte, and a fuel electrode is maintained to an elevated temperature, the reducing gas containing hydrogen gas etc. is supplied to a fuel electrode front face.

Furthermore, an electrical potential difference is impressed between two electrodes so that a fuel electrode may serve as plus potential and an air pole may serve as minus potential.

[0044] According to the potential difference of a fuel electrode and an air pole, the reaction of the following (2a) and (2b) advances with each electrode.

[0045]

Air pole side :  $\text{La}(1-y)\text{Sr}_y\text{MnO}_x + 2e^- \rightarrow \text{Y}_1 + \text{O}_2^- \dots (2a)$

Fuel electrode side :  $\text{H}_2 + \text{O}_2^- \rightarrow \text{H}_2\text{O} + 2e^- \dots (2b)$

In an air pole, from an air pole ingredient, a part of oxygen carries out the Khai \*\*, and ionizes according to an operation of the electron ( $e^-$ ) which has moved according to the potential difference between two electrodes. This oxygen ion ( $\text{O}_2^-$ ) reaches a fuel electrode through a solid electrolyte, combines with hydrogen ( $\text{H}_2$ ) there, and generates an electron ( $e^-$ ) with water. Again, according to the potential difference of two electrodes, the generated electron ( $e^-$ ) flows into an air pole, and a series of above-mentioned reactions are urged to it.

[0046] Since oxidation gas is continuously supplied to an air pole front face at the time of the usual operation, the source of supply of  $\text{O}_2^-$  generated in an air pole side is oxidation gas supplied. However, under an above-mentioned condition, supply of oxidation gas on an air pole front face stops, and since oxygen tension is low, the air pole itself serves as a source of supply of  $\text{O}_2^-$ . Consequently, an air pole is returned, the reaction of the above-mentioned (2a) formula advances, and a product Y1 is generated.

[0047] A product Y1 is mostly common in the product X1 in the gestalt of the 1st operation. That is, it is expected that it becomes the a large number matter containing  $\text{MnO}$ ,  $\text{La}_x\text{O}_y$ ,  $\text{Sr}_x\text{O}_y$ , etc. like the product X1 in the reaction formula (1) in the gestalt of the 1st operation. Therefore, Y1 as well as Xone is the weak matter in a low voice, and disintegration tends to be carried out.

[0048] The reaction of the above-mentioned (2a) formula occurs from the air pole which touches an interface with a solid electrolyte first. By this reaction, the air pole section (a solid electrolyte / air pole interface) which has fixed to the solid electrolyte carries out disintegration, and becomes possible [ separating an air pole from a solid electrolyte easily ].

[0049] As for the temperature of the air pole of the reaction time of the above (2a) and the (2b) type, a solid electrolyte, and a fuel electrode, it is desirable to set it as temperature to which a reaction rate does not become not much slow. Moreover, in the above-mentioned reaction, since it will be the requisite that  $\text{O}_2^-$  moves in the inside of a solid electrolyte, a solid electrolyte needs to show good oxygen ion conductivity. When these things are taken into consideration, it is desirable to consider as 700 degrees C – 1200 degrees C conditions.

[0050] Let the reducing gas supplied to a fuel electrode front face be the mixed gas of for example, hydrogen ( $\text{H}_2$ ) gas and inert gas, such as nitrogen gas ( $\text{N}_2$ ). Of course, fuel gas other than hydrogen may be used. The safety of 1% – 4%, then an activity is [ the mole fraction of the hydrogen gas to mixed gas ] securable.

[0051]

[Example] The example of the dismantling approach of a solid oxide fuel cell cel based on the gestalt of the 1st and the 2nd operation mentioned above is explained below. Here, it mainly considers as the object of dismantling of a cylindrical cel as shown in drawing 2 .

[0052] Drawing 1 (a) – drawing 1 (d) are drawings having usually shown notionally the cross section of the main components of SOFC in each dismantling process after the time of operation, and shutdown.

[0053] Drawing 1 (a) usually shows the cross section of the main components of SOFC at the time of operation. Centering on the solid electrolyte 12, left-hand side is equipped with an air pole 11, right-hand side is equipped with the fuel electrode 13, and three layers are stuck firmly mutually [ these ]. The current collection ingredient 14 fixes to the outside surface of an air pole 11, and the current collection ingredient 15 has fixed to the outside surface of a fuel electrode 13.

[0054] In a solid electrolyte 12, YSZ and an air pole 11 make Pt and the fuel electrode side current collection ingredient 15 to  $\text{La}(1-y)\text{Sr}_y\text{MnO}_x$ , and a fuel electrode 13 makes nickel felt a nickel-YSZ cermet and the air pole side current collection ingredient 14 for them.

[0055] In the exterior of the air pole side current collection ingredient 14, air (Air) is passed during operation, and hydrogen ( $\text{H}_2$ ) is passed in the exterior of a fuel electrode side current collection ingredient. Since each current collection ingredient has an opening, each distributed gas is supplied to each electrode surface through the opening.

[0056] To an air pole 11, an electron ( $e^-$ ) is supplied through an external circuit, and oxygen ion ( $\text{O}_2^-$ ) is generated by the reaction of an electron ( $e^-$ ) and an air pole 11 in it.  $\text{O}_2^-$  passes along a solid electrolyte 12,

moves to a fuel electrode 13 from an air pole 11, reacts with H<sub>2</sub> supplied there, and generates an electron (e<sup>-</sup>). This electron (e<sup>-</sup>) flows to an air pole 11 through an external circuit. In addition, the temperature of the cell under operation is set as 800 degrees C – 1200 degrees C.

[0057] As for the following processes, it is desirable to carry out, while equipment is maintaining high temperature.

[0058] first, it is shown in drawing 1 (b) — as — the approach of the gestalt the 2nd operation — following — fuel electrode side 13 — hydrogen (H<sub>2</sub>) — 2 – three-mol % — the included inert gas is supplied. On the other hand, it stops and supply of the air by the side of an air pole 11 is made into a condition as it is. In addition, it does not care about passing the inert gas after an air supply halt etc.

[0059] As shown in drawing 1 (b), an electrical potential difference is impressed between two electrodes so that an air pole 11 may serve as minus potential and a fuel electrode 13 may serve as plus potential. The potential difference established between two electrodes is good above the potential difference generated at the time of normal operation, and an EQC. In order to finish for a short time, the higher one of applied voltage is desirable.

[0060] In the air pole 11 which touches an interface with a solid electrolyte 12, the reaction of the formula in the gestalt of the 2nd operation (2a) advances, and oxygen ion (O<sup>2-</sup>) is generated. Generated O<sup>2-</sup> moves to a fuel electrode 13 from an air pole 11 through a solid electrolyte, in a fuel electrode 13, the reaction of the (2b) type in the gestalt of the 2nd operation advances, and an electron (e<sup>-</sup>) generates it.

[0061] Consequently, in an air pole, the reduction reaction of a formula advances (2a) and the product Y1 which is easy to carry out disintegration is generated. As shown in drawing 1 (b), in order to start this reaction on air pole 11 front face of an interface with a solid electrolyte 12, it becomes possible [ separating an air pole 11 from a solid electrolyte 12 easily ] first.

[0062] In addition, in immediately after the shutdown of equipment, although two electrodes can only be short-circuited and an above-mentioned reaction can also be advanced in it even if it does not impress an electrical potential difference to two electrodes from the exterior since the potential difference by the shade of oxygen ion (O<sup>2-</sup>) concentration exists between an air pole 11 and a fuel electrode 13, there is little effectiveness.

[0063] Next, the gestalt machine \*\*\*\* dismantling process of the 1st operation is performed. This dismantling process also has the desirable thing for which equipment is maintaining high temperature (500 degrees C or more) with remaining heat and to perform for striking.

[0064] it is shown in drawing 1 (c) — as — the gestalt of the 1st operation — being based — an air pole 11 side — H<sub>2</sub> — about 2 – three-mol % — N<sub>2</sub> included gas is passed. It is not necessary to pass gas especially in a fuel electrode 13 side. On air pole 11 front face, the reduction reaction shown in (1) type shown in the gestalt of the 1st operation advances, and the product X1 which is easy to carry out disintegration in connection with this is generated. Separation with the current collection ingredient 14 of Pt and an air pole 11 is attained.

[0065] Then, equipment will be cooled completely and the mechanical demolition of equipment will be performed. As shown in drawing 1 (d), it is easily [ the air pole side current collection ingredient 14, an air pole 11, and a solid electrolyte 12 ] separable with two above-mentioned processes. Independently, the current collection ingredient 14 and an air pole 11 become recoverable, and can be reused, respectively.

[0066] In addition, the current collection ingredient 15 by the side of a solid electrolyte 12, a fuel electrode 13, and a fuel electrode has fixed also in this phase. However, since it is the admixture of YSZ which is the ingredient of a solid electrolyte 12, and nickel which is the ingredient of the current collection ingredient 15, the nickel-YSZ cermet which is the ingredient of a fuel electrode 13 is reusable as a fuel electrode ingredient by carrying out grinding rework of the three layers [ having fixed ] as it is.

[0067] Moreover, since there is a big aperture in the melting point temperature of nickel and YSZ, it is not difficult to carry out separation recovery of both from mixed scrap wood using this, either.

[0068] In addition, although cylindrical [ which was shown in drawing 2 / SOFC ] has the fuel feeding pipe 26 in the innermost part of the cylinder, since this can also use tubing made from nickel, grinding rework can be carried out together with solid electrolyte 12 grade.

[0069] Since the 1st and the process based on the gestalt of the 2nd operation which were mentioned above can use the remaining heat of equipment if it carries out immediately after a generation-of-electrical-energy halt as it is the simple process which can be performed maintaining the equipment configuration at the time of operation mostly and is moreover shown in an above-mentioned example, they are efficient and can be performed by low cost.

[0070] As mentioned above, although this invention was explained in accordance with the example, this invention is not restricted to these. For example, the air pole ingredient of SOFC used as the candidate for dismantling may be the perovskite mold oxide which was not limited to La(1-y) SryMnOX mentioned above, but used lanthanum cobalt NETO (LaCoOX) and lanthanum comics NETO (LaMnOX) other than this as the parent.

[0071]

[Effect of the Invention] As stated above, according to the dismantling approach of the solid oxide fuel cell of this invention, the separation recovery for every component becomes possible from a used cell easily. The purity of these ingredients by which separation recovery is carried out is high, and can aim at reuse effectively

as a cell manufacture ingredient. It becomes possible to reduce the reconstruction cost of the power generating plant of a solid oxide fuel cell by this. Generating of the industrial waste which furthermore poses a problem in recent years can also be controlled.

---

[Translation done.]



**\* NOTICES \***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the sectional view of the main components of SOFC in each process of the dismantling approach in the example of this invention.

[Drawing 2] It is the perspective view of the equipment in which the example of a configuration of the conventional monotonous mold SOFC is shown.

[Drawing 3] It is the sectional view of the equipment in which the conventional example of a configuration cylindrical [ SOFC ] is shown.

[Description of Notations]

11, 21, 31 ... Air pole

12, 22, 32 ... Solid electrolyte

13, 23, 33 ... Fuel electrode

14, 24, 34 ... Current collection ingredient

15, 25, 35 ... Current collection ingredient

---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-16594

(43) 公開日 平成11年(1999) 1月22日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 8/04  
8/12  
10/54H 0 1 M 8/04  
8/12  
10/54

Z

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平9-166224

(22) 出願日 平成9年(1997) 6月23日

(71) 出願人 000156938

関西電力株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目3番22号

(71) 出願人 000005186

株式会社フジクラ

東京都江東区木場1丁目5番1号

(72) 発明者 藤田 淳一

大阪府大阪市北区中之島3丁目3番22号

関西電力株式会社内

(72) 発明者 竹内 伸二

大阪府大阪市北区中之島3丁目3番22号

関西電力株式会社内

(74) 代理人 弁理士 三好 秀和 (外4名)

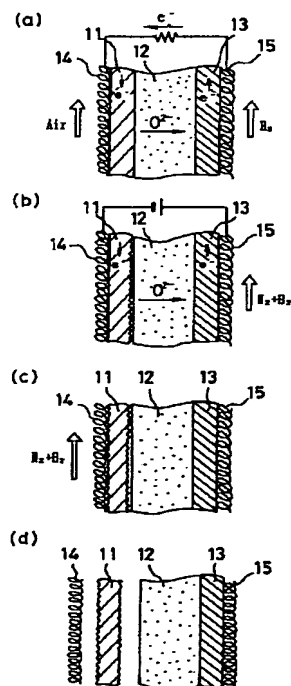
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体電解質型燃料電池の解体方法

(57) 【要約】

【課題】 構成部材ごとに分離回収可能な固体電解質型燃料電池の解体方法を提供することである。

【解決手段】 高温条件下、空気極と燃料極とを電氣的に接続させた状態で、空気極への酸化ガスの供給を止めるとともに、燃料極表面を還元ガス雰囲気中に晒す。電極に強制的に電圧をかけ、これにより固体電解質との界面での空気極の還元反応を進行させ、固体電解質と空気極とを分離する。さらに、空気極を高温還元雰囲気中に晒し、前記空気極表面の還元反応を進行させ、空気極表面に固着されている集電材料を分離する。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】 固体電解質と、

前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、  
前記固体電解質の他方の面に形成された空気極と、  
前記空気極上に固着された集電材料とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、  
前記空気極の温度を 5 0 0 ℃～1 2 0 0 ℃とする条件下、該空気極の表面を還元ガス雰囲気に晒すことにより、前記空気極から前記集電材料を分離する工程を有することを特徴とする固体電解質型燃料電池の解体方法。

【請求項 2】 前記還元ガスが、水素ガスと不活性ガスとの混合ガスであることを特徴とする請求項 1 に記載の固体電解質型燃料電池の解体方法。

【請求項 3】 前記混合ガスに対する前記水素ガスのモル分率が 1 %～4 %であることを特徴とする請求項 2 に記載の固体電解質型燃料電池の解体方法。

## 【請求項 4】 固体電解質と、

前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、  
前記固体電解質の他方の面に形成された空気極とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、  
前記固体電解質、燃料極および空気極の温度を 7 0 0 ℃～1 2 0 0 ℃とし、該燃料極表面に還元ガスを供給するとともに、該空気極表面への酸化ガスの供給を停止した条件下で、前記空気極と前記燃料極とを電気的に接続することにより、前記固体電解質と前記空気極とを分離する工程を有することを特徴とする固体電解質型燃料電池の解体方法。

【請求項 5】 前記固体電解質と前記空気極とを分離する工程において、前記空気極がマイナス電位、前記燃料極がプラス電位となるように両電極間に電圧を印加することを特徴とする請求項 4 に記載の固体電解質型燃料電池の解体方法。

【請求項 6】 前記還元ガスが、水素ガスと不活性ガスとの混合ガスであることを特徴とする請求項 4 または請求項 5 に記載の固体電解質型燃料電池の解体方法。

【請求項 7】 前記混合ガスに対する水素ガスのモル分率が 1 %～4 %であることを特徴とする請求項 6 に記載の固体電解質型燃料電池の解体方法。

## 【請求項 8】 固体電解質と、

前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、  
前記固体電解質の他方の面に形成された空気極と、  
前記空気極上に固着された集電材料とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、  
前記固体電解質、燃料極および空気極の温度を 7 0 0 ℃～1 2 0 0 ℃とし、該燃料極表面に還元ガスを供給するとともに、該空気極表面への酸化ガスの供給を停止した条件下で、前記空気極と前記燃料極とを電気的に接続することにより、前記固体電解質と前記空気極とを分離する第 1 工程と、

前記第 1 工程後、前記空気極の温度を 5 0 0 ℃～1 2 0

0 ℃とし、該空気極の表面を還元ガス雰囲気に晒すことにより、前記空気極から前記集電材料を分離する第 2 工程とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体電界質型燃料電池の解体方法に関し、特に電池セルを構成する材料の分離回収が可能な解体方法に関するものである。

## 【0 0 0 2】

【従来の技術】固体電解質型燃料電池（S O F C）は、空気極、固体電解質、および燃料極からなる三層構造を基本構造とする。

【0 0 0 3】図 2 は、従来の円筒型 S O F C の単一セルの構造例を示す断面図である。図 2 中上側に示す図が、円筒の長軸方向に平行に切った断面図、図 2 中下側に示す図が、円筒の長軸方向に垂直に切った断面図である。ここでは、外側から円筒状の空気極 2 1、固体電解質 2 2、燃料極 2 3 の順で三層が構成されている。

【0 0 0 4】また、同図に示すように、空気極 2 1 の外表面上および燃料極 2 3 の内表面上にはそれぞれ集電材料 2 4、2 5 を備えることが多い。集電材料 2 5 の内側には、多数のガス吹き出し穴を有する燃料供給管兼導電管 2 6 が備えられている。

【0 0 0 5】燃料供給管兼導電管 2 6 内には、水素（H<sub>2</sub>）等の燃料ガスが供給され、ガス吹き出し穴から吹き出したガスは、集電材料 2 5 の空隙を通して燃料極 2 3 の表面に供給される。また、この燃料供給管兼導電管 2 6 は、燃料極 2 3 の引き出し電極としての役割も有し、集電材料 2 5 を介して燃料極 2 3 に電気的に接続される。

【0 0 0 6】円筒外部には、空気（A i r）等の酸化ガスが供給され、集電材料 2 4 の空隙を通して空気極 2 1 表面に供給される。

【0 0 0 7】空気極 2 1 に空気（A i r）が供給されると、ここで酸素イオン（O<sup>2-</sup>）が生成される。この O<sup>2-</sup> は、固体電解質 2 2 中を移動し、燃料極 2 3 に到達する。燃料極 2 3 では、この O<sup>2-</sup> と燃料極 2 3 に供給される H<sub>2</sub> とが反応し、電子（e<sup>-</sup>）を生成する。

【0 0 0 8】図 3 は、従来の平板型 S O F C の構造例を示す分解斜視図である。単一セルは、板状の空気極 3 1 と、空気極 3 1 の一方の面上に形成される固体電解質 3 2 と、さらにその面上に形成される燃料極 3 3 とから構成される。同図に示すように、単一セルの上下には、インターコネクタでもあるセパレータ 4 0、4 1 が備えられる。空気極 3 1 とセパレータ 4 0 との間、または燃料極 3 3 とセパレータ 4 1 との間には、メッシュ状の集電材料 3 4、3 5 が備えられることが多い。

【0 0 0 9】固体電解質が良好な酸素イオン導電性を示すためには、高温条件が必要とされることから、これらの S O F C は通常 8 0 0 ℃～1 1 0 0 ℃の高温で運転さ

れる。よって、S O F C を構成する固体電解質、空気極、燃料極としてはいずれも高温酸化雰囲気もしくは高温還元雰囲気中で化学的安定性の高い材料が用いられる。

【0010】例えば固体電解質としては、高温酸化還元雰囲気中で化学的に安定であり、良好なイオン導電性を示す安定化ジルコニア（Y S Z）が最も一般的に用いられている。空気極としては、高い電子導電性を有するとともに高温酸化雰囲気中で化学的に安定なランタンストロンチウムマンガナイト（ $\text{La}_{1-y}\text{Sr}_y\text{MnOx}$ ）等、燃料極としては高い電子導電性を有するとともに高温還元

雰囲気中で化学的に安定なニッケル（Ni）と Y S Z のサーメット等がそれぞれ用いられる。

【0011】また、空気極側集電材料としては、高温酸化還元雰囲気中で安定であり、高い導電性を有する白金（Pt）や金（Au）、燃料極側集電材料としては、高温還元雰囲気中で安定であり、高い導電性を有するニッケル（Ni）フェルト等が用いられることが多い。セパレータとしては、高温の酸化還元雰囲気中で化学的に安定であるとともに、高い電子導電性を示すランタンクロマイト系酸化物（ $\text{LaCrOx}$ ）等が用いられることが多い。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】空気極として用いられるランタンストロンチウムマンガナイト（ $\text{La}_{1-y}\text{Sr}_y\text{MnOx}$ ）等の材料や集電材料として用いられている白金（Pt）や金（Au）等の貴金属は高価な材料である。このため S O F C 発電プラントが使用済みとなり、解体される際には分離回収し、再利用することが望まれる。

【0013】しかし、S O F C を構成する固体電解質、空気極および燃料極は、いずれもセラミックスを主材料として用いており、電気特性や強度を保つために焼結などの過程を経て、共にしっかりと固着されている。また、空気極とその表面に配される集電材料も高温運転される間に、互いにしっかりと固着されてしまう。このため、使用済みの S O F C からこれらの各材料を分離回収することは極めて困難である。

【0014】また、空気極の主成分であるマンガ酸化物等は、産業廃棄物に指定されている材料であるため、発電プラントの運転停止に伴い、大量の産業廃棄物がでる恐れがある。

【0015】本発明の目的は、構成部材を容易に分離回収可能な固体電解質型燃料電池の解体方法を提供することである。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明の請求項 1 に記載した解体方法の特徴は、固体電解質と、前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、前記固体電解質の他方の面に形成された空気極と、前記空気極上に固着された集電材料とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、前記空気極の温度を 500℃～1200℃と

する条件下、該空気極の表面を還元ガス雰囲気中に晒すことにより、前記空気極から前記集電材料を分離する工程を有することである。

【0017】上記請求項 1 の方法によれば、空気極の表面層が還元されて脆くなる。このため集電材料が固着されている空気極表面が粉末状と化し、容易に空気極から集電材料を分離することが可能となる。

【0018】本発明の請求項 2 に記載した解体方法の特徴は、請求項 1 の方法において、前記還元ガスを水素ガスと不活性ガスとの混合ガスとすることである。

【0019】上記請求項 2 の方法によれば、請求項 1 の方法を用いた際に起こる空気極の還元反応を確実に起こすことができる。

【0020】本発明の請求項 3 に記載した解体方法の特徴は、請求項 2 の方法において、前記混合ガスに対する水素ガスのモル分率を 1%～4% とすることである。

【0021】上記請求項 3 の方法によれば、水素ガスのモル分率が爆発限界内にあるため、作業の安全を確保できる。

【0022】本発明の請求項 4 に記載した解体方法の特徴は、固体電解質と、前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、前記固体電解質の他方の面に形成された空気極とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、前記固体電解質、燃料極および空気極の温度を 700℃～1200℃とし、該燃料極表面に還元ガスを供給するとともに、該空気極表面への酸化ガスの供給を停止した条件で、前記空気極と前記燃料極とを電氣的に接続することにより、前記固体電解質と前記空気極とを分離する工程を有することである。

【0023】上記請求項 4 の方法によれば、空気極と燃料極間の電位差が存在すると、その電位差により、空気極から酸素イオンが脱離し、この酸素イオンが固体電解質を介して燃料極に移動する。この酸素イオンの脱離反応に伴い、空気極が還元され、粉末状の物質に変化する。固体電解質との接合界面の空気極が粉末化するため、空気極と固体電解質を分離回収することが可能となる。

【0024】本発明の請求項 5 に記載した解体方法の特徴は、請求項 4 の方法の前記固体電解質と前記空気極とを分離する工程において、前記空気極がマイナス電位、前記燃料極がプラス電位となるように両電極間に電圧を印加することである。

【0025】上記請求項 5 の方法によれば、前記空気極と前記燃料極との間に確実に電位差が発生するため、空気極の還元反応をより確実に効率よく進行させることができる。

【0026】本発明の請求項 6 に記載した解体方法の特徴は、請求項 4 または請求項 5 において、還元ガスを水素ガスと不活性ガスとの混合ガスとすることである。

【0027】上記請求項 6 の方法によれば、請求項 4 ま

たは請求項 5 の方法を用いた際に起こる空気極の還元反応を確実に起こすことができる。

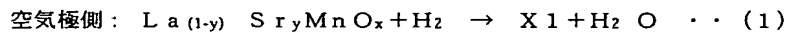
【0028】本発明の請求項 7 に記載した解体方法の特徴は、請求項 6 の方法において、前記混合ガスに対する水素ガスのモル分率を 1 % ~ 4 % とすることである。

【0029】上記請求項 7 の方法によれば、水素ガスのモル分率が爆発限界内にあるため、作業の安全を確保できる。

【0030】本発明の請求項 8 に記載した解体方法の特徴は、固体電解質と、前記固体電解質の一方の面に形成された燃料極と、前記固体電解質の他方の面に形成された空気極と、前記空気極上に固着された集電材料とを有する固体電解質型燃料電池の解体方法において、前記固体電解質、燃料極および空気極の温度を 7 0 0 ° C ~ 1 2 0 0 ° C とし、該燃料極表面に還元ガスを供給するとともに、該空気極表面への酸化ガスの供給を停止した条件で、前記空気極と前記燃料極とを電気的に接続することにより、前記固体電解質と前記空気極とを分離する第 1 工程と、前記第 1 工程後、前記空気極の温度を 5 0 0 ° C ~ 1 2 0 0 ° C とし、該空気極の表面を還元ガス雰囲気

に晒すことにより、前記空気極から前記集電材料を分離する第 2 工程とを有することである。

【0031】上記請求項 8 の方法によれば、第 1 工程により固体電解質と空気極とを分離できるとともに、第 2



上記 (1) 式の還元反応により生成される生成物 X 1 の組成は明かではないが、例えば、 $\text{MnO}$ 、 $\text{La}_x\text{O}_y$ 、 $\text{Sr}_x\text{O}_y$  等の多数物質となることが予想される。発明者等の経験によれば、生成物 X 1 はぼそぼその脆いものであり、粉末化され易いことが確認されている。即ち、上記 (1) 式の反応の結果、集電材料が固着している空気極表面が粉末化し、集電材料が容易に空気極から分離できるようになる。

【0038】上記 (1) 式の反応速度は空気極側の温度に依存するため、現実的な反応速度を得るためには、例えば 5 0 0 ° C 以上、好ましくは 8 0 0 ° C 以上とすることが好ましい。また、S O F C の動作温度を越える高温に設定すると、セル構成材料間の反応や周辺設備への熱負荷の問題が生じる虞れがある。よって 1 2 0 0 ° C 程度を上限温度とすることが好ましい。

【0039】空気極表面に供給する還元ガスは、例えば水素 ( $\text{H}_2$ ) ガスと窒素 ( $\text{N}_2$ ) ガス等の不活性ガスとの混合ガスを用いるとよい。なお、混合ガスに対する水素ガスのモル分率を 1 ~ 4 % 程度に設定すれば、作業の安全性を確保できる。なお、水素ガス以外の燃料ガスを用いてもよい。

【0040】図 2 に示すような、空気極を円筒外部に備えた円筒型 S O F C では、上述の方法を用いることにより、空気極側集電材料 2 4 を容易に分離回収することが可能となる。回収できる P t 等の貴金属材料は、組成変

工程により空気極から集電材料を分離できるため、固体電解質型燃料電池から空気極を独立に分離回収することが可能となる。

【0032】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について説明する。解体の対象とする S O F C は、従来の円筒型、平板型いずれの S O F C でもよい。

【0033】これらの S O F C の代表的な各構成材料は、例えば固体電解質が Y S Z、空気極が  $\text{La}_{(1-y)} \text{Sr}_y \text{MnO}_x$ 、燃料極が N i - Y S Z サーメット、空気極側集電材料が P t、A u、燃料極側集電材料が N i フェルトである。

【0034】(第 1 の実施の形態) 本発明の S O F C の解体方法の第 1 の実施の形態について説明する。この解体方法は、空気極表面に固着している集電材料を空気極から分離できる方法である。

【0035】この方法は、S O F C の運転を止め、空気極、燃料極へのガスの供給を停止した後、空気極を高温に維持した状態で、空気極表面に水素ガス等の還元ガスを供給する工程のみからなる。

【0036】この工程において、空気極表面では以下の (1) 式に示す還元反応が進行する。

【0037】

化がなく、当初の価値を維持したものであるため、分離回収によるメリットは大きい。

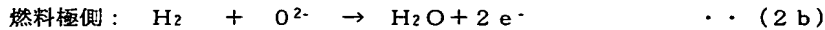
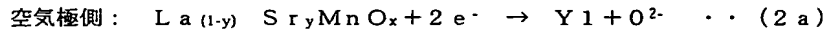
【0041】なお、平板型 S O F C においては、集電材料を介さず直接空気極とセパレータとが固着されている構造のものも多い。セパレータ材料としては、一般に空気極材料より還元雰囲気により安定なランタンクロマイト系酸化物 ( $\text{LaCrO}_x$ ) 等の材料が用いられている。このため、セパレータと空気極の間に還元ガスを流すと、空気極がより早く還元される。この結果、セパレータと空気極との界面部分の空気極が脆い生成物 X 1 にかわり、空気極からセパレータを容易に分離することが可能となる。

【0042】(第 2 の実施の形態) 本発明の S O F C の解体方法の第 2 の実施の形態について説明する。この解体方法は、特に固体電解質と空気極とを分離できる方法である。

【0043】この方法では、S O F C の運転を止め、空気極への酸化ガスの供給を停止した後、空気極、固体電解質および燃料極の温度を高温に維持した状態で、燃料極表面に水素ガス等を含む還元ガスを供給する。さらに、燃料極がプラス電位、空気極がマイナス電位となるように、両電極間に電圧を印加する。

【0044】燃料極と空気極の電位差によって、各電極では、以下の (2 a)、(2 b) の反応が進行する。

【0045】



空気極では、両電極間の電位差によって移動してきた電子 ( $\text{e}^-$ ) の作用により、空気極材料から一部の酸素がカイ離してイオン化する。この酸素イオン ( $\text{O}^{2-}$ ) は固体電解質を通して燃料極に達し、そこで水素 ( $\text{H}_2$ ) と化合し、水とともに電子 ( $\text{e}^-$ ) を生成する。生成された電子 ( $\text{e}^-$ ) は、再び両電極の電位差によって、空気極に流れ込み、上述の一連の反応を促す。

【0046】通常の運転時においては、空気極表面に酸化ガスが連続的に供給されるため、空気極側で発生する  $\text{O}^{2-}$  の供給源は、供給される酸化ガスである。しかし、上述の条件下においては、空気極表面への酸化ガスの供給は停止されており、酸素分圧が低いため、空気極自身が  $\text{O}^{2-}$  の供給源となる。この結果、空気極が還元され、上記 (2a) 式の反応が進行し、生成物 Y1 が生成される。

【0047】生成物 Y1 は、第 1 の実施の形態における生成物 X1 とほぼ共通するものである。即ち、第 1 の実施の形態における反応式 (1) での生成物 X1 と同様に、 $\text{MnO}$ 、 $\text{La}_x\text{O}_y$ 、 $\text{Sr}_x\text{O}_y$  等を含む多数物質になると予想される。よって、Y1 も X1 と同様にほぼその脆い物質であり、粉末化され易いものである。

【0048】上記 (2a) 式の反応は、固体電解質との界面に接する空気極からまず起こる。この反応により、固体電解質に固着している空気極部 (固体電解質/空気極界面) が粉末化し、空気極を固体電解質から容易に分離することが可能となる。

【0049】上記 (2a)、(2b) 式の反応時の空気極、固体電解質および燃料極の温度は、反応速度があまり遅くならないような温度に設定することが好ましい。また、上記反応においては、 $\text{O}^{2-}$  が固体電解質中を移動することが前提となるので、固体電解質が良好な酸素イオン導電性を示す必要がある。これらのことを考慮すると、700℃～1200℃の条件とすることが好ましい。

【0050】燃料極表面に供給する還元ガスは、例えば水素 ( $\text{H}_2$ ) ガスと窒素ガス ( $\text{N}_2$ ) 等の不活性ガスとの混合ガスとする。勿論水素以外の燃料ガスを用いてもよい。混合ガスに対する水素ガスのモル分率を 1%～4% とすれば、作業の安全性を確保できる。

【0051】

【実施例】上述した第 1、第 2 の実施の形態に基づく固体電解質型燃料電池セルの解体方法の実施例について以下に説明する。ここでは、主に、図 2 に示すような円筒型セルを解体の対象とする。

【0052】図 1 (a)～図 1 (d) は、通常運転時および運転停止後の各解体工程における SOFC の主要構成部分の断面を概念的に示した図である。

【0053】図 1 (a) は、通常運転時の SOFC の主

要構成部分の断面を示す。固体電解質 12 を中心として、左側に空気極 11、右側に燃料極 13 が備えられており、これらの 3 層は互いにしっかりと密着している。空気極 11 の外表面には集電材料 14 が、燃料極 13 の外表面には集電材料 15 が固着している。

【0054】固体電解質 12 は YSZ、空気極 11 は  $\text{La}_{(1-y)}\text{Sr}_y\text{MnO}_x$ 、燃料極 13 は Ni-YSZ サーマット、空気極側集電材料 14 は Pt、燃料極側集電材料 15 は Ni フェルトとする。

【0055】運転中において、空気極側集電材料 14 の外部には空気 (Air) が流され、燃料極側集電材料の外部には水素 ( $\text{H}_2$ ) が流される。各集電材料は空隙を有するため、その空隙を通り各供給ガスは各電極表面に供給される。

【0056】空気極 11 には、外部回路を介して電子 ( $\text{e}^-$ ) が供給され、電子 ( $\text{e}^-$ ) と空気極 11 との反応により酸素イオン ( $\text{O}^{2-}$ ) が発生する。 $\text{O}^{2-}$  は固体電解質 12 を通り、空気極 11 から燃料極 13 に移動し、そこで供給される  $\text{H}_2$  と反応し、電子 ( $\text{e}^-$ ) を発生する。この電子 ( $\text{e}^-$ ) は、外部回路を介して空気極 11 に流れる。なお、運転中の電池セルの温度は 800℃～1200℃に設定されている。

【0057】以下の工程は、装置が高い温度を維持している間に行うことが好ましい。

【0058】まず、図 1 (b) に示すように、第 2 の実施の形態の方法に従い、燃料極側 13 に水素 ( $\text{H}_2$ ) を 2～3 モル% 含む不活性ガスを供給する。一方、空気極 11 側への空気の供給は停止し、そのままの状態とする。なお、空気供給停止後不活性ガス等を流すことはかまわない。

【0059】図 1 (b) に示すように、空気極 11 がマイナス電位、燃料極 13 がプラス電位となるように、両電極間に電圧を印加する。両電極間に設ける電位差は、通常動作時に発生する電位差と同等以上でよい。短時間で済ませるには、印加電圧は高い方が望ましい。

【0060】固体電解質 12 との界面に接する空気極 11 では第 2 の実施の形態における (2a) 式の反応が進行し酸素イオン ( $\text{O}^{2-}$ ) が発生する。発生した  $\text{O}^{2-}$  は固体電解質を介して空気極 11 から燃料極 13 に移動し、燃料極 13 では第 2 の実施の形態における (2b) 式の反応が進行し、電子 ( $\text{e}^-$ ) が発生する。

【0061】この結果、空気極では (2a) 式の還元反応が進行し、粉末化しやすい生成物 Y1 が生成される。図 1 (b) に示すように、この反応はまず、固体電解質 12 との界面の空気極 11 表面でおこるため、空気極 11 を固体電解質 12 から容易に分離することが可能となる。

【0062】なお、装置の運転停止直後においては、空

気極 1 1 と燃料極 1 3 との間には、酸素イオン ( $O^{2-}$ ) 濃度の濃淡による電位差が存在するため、両電極に外部から電圧を印加しなくても、両電極を短絡させるだけで、上述の反応を進行させることもできるが、効果は少ない。

【0063】次に、第 1 の実施の形態に基づく解体工程を行う。この解体工程も、装置が余熱により高い温度 (500℃以上) を維持しているうちに行うことが好ましい。

【0064】図 1 (c) に示すように、第 1 の実施の形態に基づき、空気極 1 1 側に  $H_2$  を約 2 ~ 3 モル% 含む  $N_2$  ガスを流す。燃料極 1 3 側には、特にガスを流す必要はない。空気極 1 1 表面では、第 1 の実施の形態において示した (1) 式に示す還元反応が進行し、これに伴い粉末化しやすい生成物 X 1 が生成される。Pt の集電材料 1 4 と空気極 1 1 との分離が可能になる。

【0065】その後、装置を完全に冷却し、装置の機械的な解体作業を行うことになる。図 1 (d) に示すように、上述の 2 つの工程によって、空気極側集電材料 1 4、空気極 1 1 および固体電解質 1 2 とは容易に分離できる。集電材料 1 4 と空気極 1 1 はそれぞれ単独で回収可能となり、再利用することができる。

【0066】なお、固体電解質 1 2、燃料極 1 3 および燃料極側の集電材料 1 5 は、この段階でも固着したままである。しかし、燃料極 1 3 の材料である  $Ni-YSZ$  サーメットは、固体電解質 1 2 の材料である  $YSZ$  と集電材料 1 5 の材料である  $Ni$  の混合材であるため、固着されたままの 3 層をそのまま粉砕再処理することによって、燃料極材料として再利用することができる。

【0067】また、 $Ni$  と  $YSZ$  との融点温度には大きな開きがあるため、これを利用して混合廃材から両者を分離回収することも困難なことではない。

【0068】なお、図 2 に示した円筒型 SOFC は、円筒の最も内側に燃料供給管 2 6 を有しているが、これも  $Ni$  製の管を用いることができるため、固体電解質 1 2 等と一緒に粉砕再処理することができる。

【0069】上述した、第 1、第 2 の実施の形態に基づく工程は、運転時の装置形状をほぼ維持したまま行うことができる簡易な工程であり、しかも、上述の実施例に示すように、発電停止後すぐに行えば、装置の余熱を利用することができるので、効率よく、低コストで行うことができる。

【0070】以上、実施例に沿って本発明の説明を行ったが、本発明はこれらに制限されるものではない。例えば、解体対象となる SOFC の空気極材料は、上述した  $La(1-y)Sr_yMnOX$  には、限定されず、これ以外のランタンコバルトネート ( $LaCoOX$ ) やランタンマンガネート ( $LaMnOX$ ) を母体としたペロブスカイト型酸化物であってもよい。

【0071】

【発明の効果】以上に述べたように、本発明の固体電解質型燃料電池の解体方法によれば、使用済み電池セルから構成材料ごとの分離回収が容易に可能となる。分離回収されるこれらの材料の純度は高く、電池製造材料として有効に再利用を図ることができる。これによって固体電解質型燃料電池の発電プラントの再建コストを低減することが可能となる。さらに近年問題となっている産業廃棄物の発生を抑制することもできる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の実施例における解体方法の各工程における SOFC の主要構成部分の断面図である。

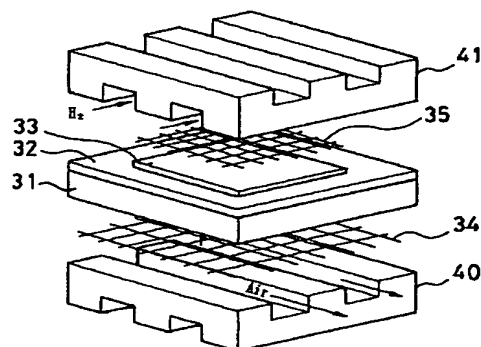
【図 2】従来の平板型 SOFC の構成例を示す装置の斜視図である。

【図 3】従来の円筒型 SOFC の構成例を示す装置の断面図である。

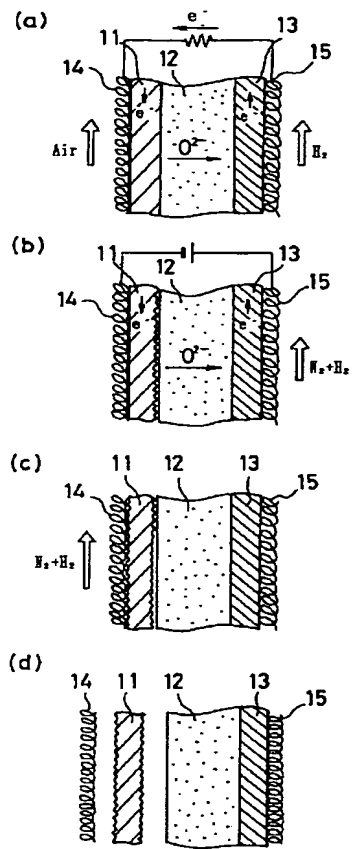
【符号の説明】

1 1、2 1、3 1・・・空気極  
1 2、2 2、3 2・・・固体電解質  
1 3、2 3、3 3・・・燃料極  
1 4、2 4、3 4・・・集電材料  
1 5、2 5、3 5・・・集電材料

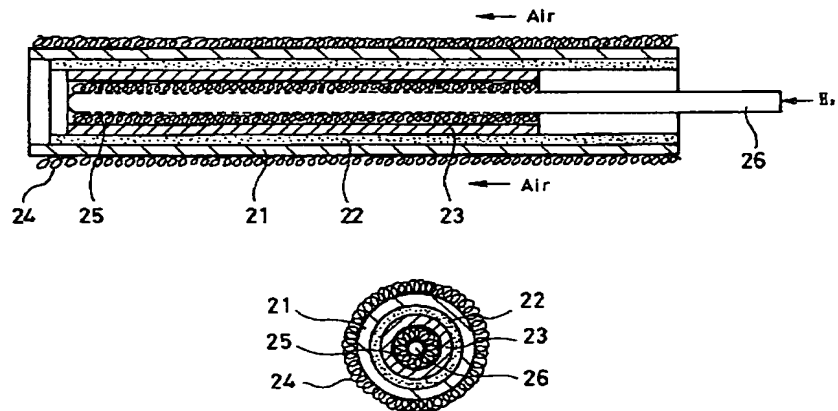
【図 3】



【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(72)発明者 永田 雅克  
東京都江東区木場 1-5-1 株式会社フ  
ジクラ内

(72)発明者 望月 正孝  
東京都江東区木場 1-5-1 株式会社フ  
ジクラ内

(72)発明者 小野 幹幸  
東京都江東区木場 1-5-1 株式会社フ  
ジクラ内

(72)発明者 岩澤 力  
東京都江東区木場 1-5-1 株式会社フ  
ジクラ内

(72)発明者 兼田 波子  
東京都江東区木場 1-5-1 株式会社フ  
ジクラ内



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**